

## アルカリケイ酸塩ガラスへ適用する原子間相互作用の考察

○山本 優也<sup>1</sup>、澤口 直哉<sup>1</sup>、佐々木 眞<sup>1</sup><sup>1</sup>室蘭工業大学大学院 工学研究科(〒050-8585 北海道室蘭市水元町 27 番 1 号)

【緒言】現在、第一原理計算による材料設計手法を取り入れた結晶性材料の開発が一般的に行われつつある。一方、ガラスは原子配列に周期構造をもたないことから、結晶に比べて組成選択性が格段に高く、新しい機能を有する可能性が高い材料ともいえる。しかし、非周期構造のモデル化には広い空間スケールを要す一方、自己拡散係数や粘性係数などの物性値を求める場合は時間スケールの長い計算を行う必要があるため、ガラスの材料設計においては計算コストの観点から第一原理計算は見合わないと考えられる。そこで、我々はガラスの構造形成がシミュレーションでき、低コスト計算が可能な古典分子動力学(MD)法を用いて、ガラスの材料設計手法の開発を行ってきた。これまでに、シミュレーション結果の精度向上を目指すために、第一原理計算の結果を利用した原子間相互作用の設定法を検討してきた。この手法による  $\text{Na}_2\text{O}-\text{SiO}_2$  系ガラスの構造と物性値の再現性が良いことを報告してきた[1]。本発表では、この手法を適用可能な組成範囲を確かめるために、アルカリ酸化物を二種類混合することでアルカリ金属イオンの移動度が減少する「混合アルカリ効果」を有するガラスの再現性の検討を行った。

【計算方法】 $y\{x(\text{Na}_2\text{O})-(1-x)\text{K}_2\text{O}\}-(1-y)\text{SiO}_2$  ガラス( $0 \leq x \leq 1, 0.1 \leq y \leq 0.5$ )を対象とした。MD 計算はソフトウェア MXDORTO [2] で行い、原子間相互作用は Sakuma らが使用した関数モデル [3]を用いた。Coulomb 力項の各イオンの電荷はアルカリケイ酸塩結晶の密度汎関数理論計算の電荷解析から見積もり、Si-O 間の原子間相互作用は  $\text{SiO}_2$  モデルの Si-O エネルギー曲面を分子軌道計算より求め、Coulomb 力項を含めた原子間相互作用を曲面にフィッティングさせることで組成に応じた原子間相互作用を得た。1 atm 下の 900 K~300 K のガラスに対し NPT アンサンブルによる MD シミュレーションを行った。

【結果・考察】Fig. 1 に 900 K における (a)  $x=1, y=0.5$  と (b)  $x=0.5, y=0.5$  のガラス中のアルカリ金属イオンの拡散の軌跡の例を示す。(a) は  $\text{Na}^+$  イオンが系全体に広がるように拡散しているのに対し、(b) は  $\text{Na}^+, \text{K}^+$  イオンともに(a) に比べ拡散距離が短いことを確認した。また、同位体元素を用いた自己拡散の実験ではアルカリを混合すると各アルカリ金属イオンの自己拡散係数が小さくなる傾向を示す報告[4] があり、シミュレーションによる自己拡散係数はこの傾向を再現した。このことから、上記設定法による原子間相互作用を適用した MD シミュレーションは混合アルカリ効果を示すガラスの再現できることが示唆された。

## 【参考文献】

- [1] Y. Yamamoto et al., *JCCJ*, **14**, 63, (2015).  
 [2] K. Kawamura, MXDORTO, *JCPE*, #29.  
 [3] H. Sakuma et al., *Geochim. Cosmochim. Acta*, **73**, 4100, (2009).  
 [4] J. W. Fleming, et al., *J. Am. Ceram. Soc.*, **55**, 186, (1972).

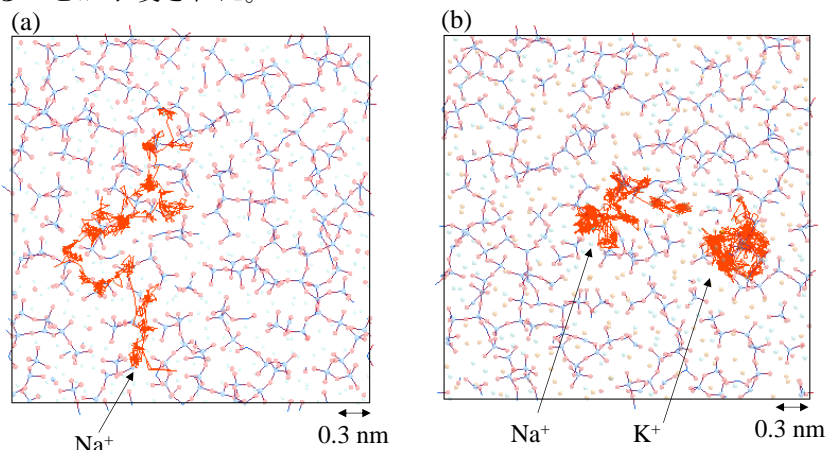


Fig. 1. Trajectory of alkali ions in  $y\{x(\text{Na}_2\text{O})-(1-x)\text{K}_2\text{O}\}-(1-y)\text{SiO}_2$  glasses at 900 K of (a)  $x=1, y=0.5$  and (b)  $x=0.5, y=0.5$  sliced views of MD cell with 0.9 nm thickness.